

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 63-308874

(43)Date of publication of application : 16.12.1988

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 62-144029

(71)Applicant : SHOWA DENKO KK

(22)Date of filing : 11.06.1987

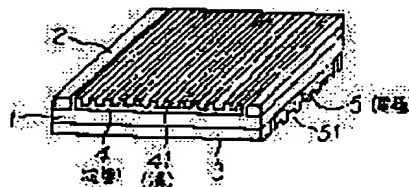
(72)Inventor : MURAKAMI SHIGERU
UEMURA TAKEO
INOUE HITOSHI
MAETA KAZUNORI

(54) MANUFACTURE OF SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PURPOSE: To improve gas sealing performance by piling impregnated sheets similarly on end parts of a cellulose sheet impregnated with thermosetting resin by the use of a pressing method or the like and next performing hardening and firing processes.

CONSTITUTION: Impregnated sheets are piled similarly on both left and right end parts of one surface of a resin impregnated sheet and on both front and back end parts of the other surface of the resin impregnated sheet, respectively, so as to form sealed parts 2 and 3. Next, the sealed parts are unified and junctioned to each other by hardening and firing processes. Thereupon when similar resin-impregnated cellulose sheets used as porous electrodes 4 are junctioned to each other in respective states prior to the hardening process between the sealed parts 2, 3 and they are provided with the hardening and firing processes, a separator 1 and porous electrodes 4, 5 can be also unified and manufactured at the same time. Further, conductivity of the separator 1 can be upgraded by the use of resin with graphite fine powder dispersed therein.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-308874

⑪ Int. Cl.

H 01 M 8/02

識別記号

庁内整理番号

B-7623-5H
S-7623-5H

⑬ 公開 昭和63年(1988)12月16日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全5頁)

⑭ 発明の名称 燃料電池用セパレーターの製造法

⑮ 特 願 昭62-144029

⑯ 出 願 昭62(1987)6月11日

⑰ 発 明 者 村 上 繁 長野県大町市大字大町6850 昭和電工株式会社大町研究所内
⑱ 発 明 者 植 村 武 夫 長野県大町市大字大町6850 昭和電工株式会社大町研究所内
⑲ 発 明 者 井 上 斉 長野県大町市大字大町6850 昭和電工株式会社大町研究所内
⑳ 発 明 者 前 多 一 則 長野県大町市大字大町6850 昭和電工株式会社大町研究所内
㉑ 出 願 人 昭和電工株式会社 東京都港区芝大門2丁目10番12号
㉒ 代 理 人 弁理士 菊地 精一 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

燃料電池用セパレーターの製造法

2. 特許請求の範囲

(1) 熱硬化性樹脂を含浸したセルロース質シートの片面の左右両端部及び他の面の前後両端部に熱硬化性樹脂を含浸したセルロース質シートを重ねてシール部を形成し、硬化、焼成して一体化することを特徴とする燃料電池用セパレーターの製造法。

(2) セパレーターのシール部間にポーラスな炭素電極を1体に取り付けたものである特許請求の範囲第1項記載の燃料電池用セパレーターの製造法。

(3) シートに黒鉛微粉を含むことを特徴とする特許請求の範囲第1項又は第2項記載の燃料電池用セパレーターの製造法。

3. 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は水素を燃料とするリン酸型燃料電池、アルカリ型燃料電池、レドックスフロー型二次

電池等に使用されるセパレーターに係り、特に端部におけるガス、液体のシールの良好なセパレーターに関する。

従来の技術

例えばリン酸型燃料電池は燃料ガスとして水素、酸素を用い、電解液にリン酸溶液を用いるものである。その構造の概略を図3に示す。図3は電池の一つのユニットで、実際の電池はこのユニットが多数積層して組立てられている。

図で4,5がポーラスな炭素電極で、これには溝41, 51が設けられている。溝は図のように通常互い違いの方向に設けられる。電極の間にはガス及び液に対し不透過性で導電性のよい炭素質セパレーター1が置かれている。

水素ガスが図の41の溝から前後方向に供給され、酸素ガスは図の溝51から左右方向に供給される。電極4の上には図3のユニットがリン酸を浸み込ませた多孔質板を介してそのまま重ねた状態にされるので、電極4の上には電極5があり、そこに酸素ガスが左右方向から供給される。

電極4に供給されたガス及び液体は図で左右方向に漏れないようにする必要があり、同様に電極5に供給されるガスは前後方向に漏れないようにされる。

従来このガス等の漏れの防止は図3に示すように緻密な炭素材6,7をセパレーター1の端部にフェノール樹脂等で接着したものが用いられている。また緻密な炭素材の代りにテフロン等の板等を用いる場合もある。

発明が解決しようとする問題点

リン酸型燃料電池はかなり高温で使用されるもので、従来のフェノール樹脂等の接着では完全にガス等をシールすることはむずかしい。また接着して組立てる作業を要し、取扱いが厄介である。

本発明の目的は燃料電池におけるガスシールを改良し、かつ電池の組立ての容易なセパレーターを提供することにある。

問題点を解決するための手段

本発明に係るセパレーターはセルロース質シートに熱硬化性樹脂を含浸し、硬化、焼成したもの

本発明におけるセパレーターはシール部分がセパレーター板と1体化しているため図3に示すような接着層61,71は存在しない。このセパレーターはポーラス電極4,5と合せて図2のように組立てられ、これが多数縦又は横に積層される。従ってシール部2,3は電極の厚さより幾分厚くする。またその巾は特に制限はないが、広過ぎると電極の面積が小さくなるので、シールが十分である限り狭い方が望ましい。実用上のセパレーターとしては10～50mm程度が適する。

本発明で用いられるセルロース質シートはセルロース質の紙、織布、不織布等である。これに含浸する熱硬化性樹脂はフェノール樹脂、フラン樹脂等であり、必要により有機溶媒で希釈して用いる。シートは薄い場合、樹脂を含浸後、所定の厚みになるように積層圧着して用いる。

本発明において、セパレーターの導電性を高めるため、例えば樹脂に黒鉛微粉を分散したものをを用いることにより、セパレーター内に黒鉛微粉を含有せしめることができる。黒鉛微粉は多過ぎる

であるが、樹脂含浸シートの片面の左右(又は前後)両端部及び他の面の前後(又は左右)両端部に前記同様に含浸シートを重ねてシール部を形成し、次いで硬化、焼成してシール部を1体に接合されたものからなることを特徴とする。

以下図面を参考にして具体的に説明する。

図1は本発明方法により製造された燃料電池用のセパレーターである。図で1はセパレーター板で通常正方形ないし長方形をなすが、その片面(表面)の左右両端部にシールのための部材2が、また他の面(裏面)の前後両端部に同様にシール部材3が形成されている。そしてこれらの材質はセルロース質のシートに熱硬化性樹脂を含浸し、硬化、焼成したものである。本発明においてシール部を形成するには熱硬化性樹脂を含浸したセルロース質シートの両端部に同様の含浸シートを圧着等により重ね合せた後、硬化、焼成することが重要である。この重ね合せの部分の一方或いは双方が硬化あるいは焼成したものをを用いると両者が気密に1体化せず、シールが十分でなくなる。

とガス不浸透性、耐食性が悪くなる等の問題が生ずる。

本発明のセパレーターの製造における望ましい組成態様を示せば、セルロースシート30～60重量%、樹脂(固形分)60～30重量%、黒鉛微粉0～30重量%である。

成形後の硬化は常法により樹脂の硬化に必要な温度に加熱して行なわれる。以上については例えば特開昭⁶⁰⁻¹⁶¹¹⁴⁴~~60-81449~~等に関示された方法を使用することができる。

硬化後の焼成は加圧しながら加熱することが望ましい。加熱温度は非酸化性雰囲気下1200℃～2500℃が適当である。この場合成形体は収縮が大きいのでこれを考慮する必要がある。加圧力熱の一つの方法としてシール部を形成した成形体の凹部にシール部と同じ高さの同様の成形体で、但し硬化後のものを挿入し、これら全体を両側から黒鉛板等で挟持して加圧加熱する方法があげられる。これによりシール部と挿入成形体が同じように収縮するので問題がない。また挿入成形体は

硬化されておれば焼成後固着することはなく取出しは容易である。この場合、例えばテフロン系などの離形剤を使用すればなお望ましい。

本発明の燃料電池の製法でセパレーターとポーラス電極を同時に一体化して製造することもできる。即ち図1のシール部間に前記と同様の樹脂含浸セルロース質シートを夫々硬化前の状態で接合し、硬化、焼成する。但し、電極はポーラスなので樹脂の含浸量をセパレーターより少なくする必要がある。この電極の製法における組成の望ましい態様はセルロース質シート80~90重量%、樹脂(固形分)5~20重量%、黒鉛微粉0~30重量%である。これにより焼成後の気孔率50~80%の炭素材となる。

焼成することにより電極とセパレーターは一体化される。次にこの電極の表面に図2のように溝加工を施す。電極はポーラスなので機械的切削により容易に溝を設けることができる。

電極の寸法精度(溝巾、溝深さ等)があまり必要とされない場合は硬化後の生成形板を溝加工し

を含むこれら全体を覆う黒鉛板で成型体を両側から挟み、 $6g/cm^2$ で加圧しながら、 $5^\circ C/hr$ 、窒素雰囲気下で加熱し、 $1200^\circ C$ まで昇温して焼成した。

焼成後挿入板を除いた成型板は $230mm$ 角の大きさと、両端のシール部及び内部の平板部とも厚みは $0.5mm$ であった。この炭素板の物性値を表1に示す。

表中、炭素板のシール部の通気率の測定は次のようにして行なった。上記の炭素板から一つの接合面を含むサンプルを切り出し、別にエポキシ板(通気性なし)に穴をあけ、上記サンプルを、その接合面をエポキシ板に垂直にして、挿入し、その隙間はエポキシ系接着剤でシールした。常温下、 N_2 ガスでエポキシ板の片面を常圧、他の面を2気圧にしてその際の通気量を測定した。従ってこの通気量は図1における炭素板1とシール部2の接合面及びシール部材2内の板に平行な方向の通気量を表わしている。

また表中電気比抵抗及び垂直方向通気率(N_2

てから上記したように焼成してもよい。

実施例

市販リントー紙(ダイセル化学製、厚さ約 $0.1mm$)にフェノール樹脂溶液に黒鉛微粉を分散した液中に浸漬し、 $150^\circ C$ で5分間乾燥してプリプレグ紙をつくった。黒鉛微粉は粒度 $30\mu m$ 以下のものを用い、この微粉と樹脂の割合は樹脂固形分100重量部に対し、微粉約35重量部とした。乾燥後のプリプレグ紙は樹脂40重量%、紙45重量%、黒鉛微粉15重量%である。

プリプレグ紙($300mm$ 角)を8枚重ね、さらに同じプリプレグ紙で巾 $30mm$ 長さ $300mm$ のものを図1のように重ねて全体を厚着して生成形板とした。厚着は $160^\circ C$ 、 $30kg/cm^2$ 、20分行なった。この加熱厚着によりフェノール樹脂は硬化した。

この硬化成型板の表面にテフロン系離型剤(ダイキン工業製)をスプレー塗布し、さらに成型板の凹部に凹部と同じ大きさで離型剤を塗布した上記と同様の硬化成型板を挿入し、次にシール部

ガス、1気圧)は炭素板1の面に直角方向の測定値である。

(以下余白)

1
表

嵩密度 (g/cm^3)	電気 比抵抗 ($\mu\Omega cm$)	曲げ強 さ (kgf/cm^2)	垂直方向 通気率 (cm^2/sec)	熱伝導 率 ($kcal/m.hr.^{\circ}C$)	シール部 通気率 (cm^2/sec)
1.58	3400	1650	3×10^{-8}	4.2	27×10^{-7}

表 2

嵩密度	電気 比抵抗	曲げ強 さ	垂直方向 通気率	シール部 通気率	熱伝導 率
1.56	3700	1540	5×10^{-8}	7×10^{-7}	4.0

(単位及び測定法は実施例1と同じ)

発明の効果

本発明の方法は樹脂含浸のセルロース質シートを用いるので、成形におけるシール部分の接着が良好であり、炭化後も気密となる。またセルロース質シートは炭化後もかなり炭化物が残留するので強度も大きい。さらにシートに含浸する樹脂の量を変えることにより、セパレーターと電極を1体化したものの製造可能であり、電池の組立作業が短縮される。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の製法によるセパレーターの斜視図、第2図は電極を備えた本発明のセパレーターの斜視図、第3図は電極を備えた従来の電極の斜視図である。

さらに上記の炭素板を200℃、100%リン酸液中に3000時間浸漬した結果、その重量変化は0.1重量%以下であり、良好な耐食性を示した。

実施例2

実施例1と同じ方法で得たプリプレグ紙で図1のようにセパレーターを成形した。その際同時にシール部間に樹脂の含浸量を変えた以外は同様にしてつくったプリプレグ紙を挿入し、圧着した。含浸は実施例1と同じフェノール樹脂にエタノールを容量で等量混合したものを用いて行なった。この挿入プリプレグ紙は樹脂15重量%、紙80重量%、黒鉛微粉5重量%である。

これを実施例1と同様に硬化、焼成した。このものの気孔率はセパレーター部分が0.1%以下、電極部分が67%であった。またこれを220℃で100%リン酸溶液に3000時間浸漬後の重量変化は0.1重量%以下であり、良好な耐リン酸性を示した。その他セパレーター部分の特性を表2に示す。

1…セパレーター、2,3…シール部材、4…電極、41…溝。

出 願 人 昭和電工株式会社

代 理 人 菊 地 精 一 他1名

図 1

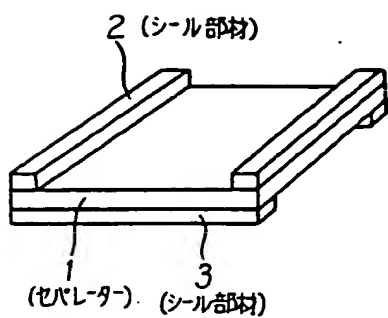


図 2

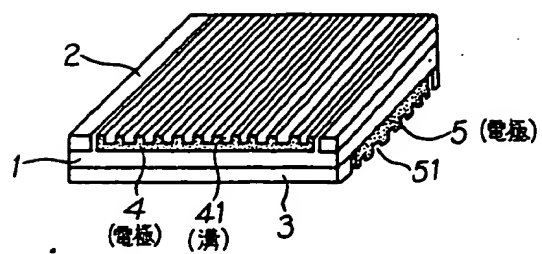


図 3

